

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年4月12日 (12.04.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/25007 A1

- (51) 国際特許分類: B32B 27/08, B29C 55/02 // B29L 9:00  
(21) 国際出願番号: PCT/JP00/06702  
(22) 国際出願日: 2000年9月28日 (28.09.2000)  
(25) 国際出願の言語: 日本語  
(26) 国際公開の言語: 日本語  
(30) 優先権データ:  
特願平11/286544 1999年10月7日 (07.10.1999) JP  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒103-8666 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号 Tokyo (JP).  
(72) 発明者: および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 町田哲也 (MACHIDA, Tetsuya) [JP/JP]; 〒520-0842 滋賀県大津市園山2丁目10 東レ園山社宅A8棟42号 Shiga (JP).  
(74) 代理人: 岩見知典 (IWAMI, Tomonori); 〒279-8555 千葉県浦安市美浜1丁目8番1号 東レ株式会社 知的財産部内 Chiba (JP).  
(81) 指定国 (国内): KR, US.  
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  
添付公開書類:  
— 国際調査報告書  
2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: LIQUID CRYSTAL RESIN LAMINATED FILM, METHOD FOR MANUFACTURING THE SAME, AND CIRCUIT BOARD COMPRISING LIQUID CRYSTAL RESIN LAMINATED FILM

(54) 発明の名称: 液晶性樹脂積層フィルム、その製造方法および液晶性樹脂積層フィルムを用いた回路基板

(57) Abstract: A liquid crystal resin laminated film in which a nonliquid-crystal thermoplastic resin layer is laminated at least on one side of a liquid crystal resin layer and the interlayer adhesion is 30 N/cm or more, or a liquid crystal resin laminated film in which a nonliquid-crystal thermoplastic resin layer is laminated at least on one side of a liquid crystal resin layer and the relationship between the heat distortion temperature (TN) of the nonliquid-crystal thermoplastic resin layer measured by thermomechanical analysis (TMA) and that (TL) of the liquid crystal resin layer is expressed by  $TN \geq TL$ . The nonliquid-crystal resin layer of the films are formed by coextrusion at least on one side of the liquid crystal resin layer and then by stretching.

(57) 要約:

液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を積層したフィルムであり、層間の接着力が30 N/cm以上である液晶性樹脂積層フィルム、または、液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を積層したフィルムであり、熱機械分析 (TMA) によって測定した該非液晶性熱可塑性樹脂層の熱変形温度 (TN)、該液晶性樹脂層の熱変形温度 (TL) が、 $TN \geq TL$  の関係を有する液晶性樹脂積層フィルムであり、これらは、液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を共押し出しした後に、延伸処理を行うことによって得られる。

## 明 細 書

液晶性樹脂積層フィルム、その製造方法および液晶性樹脂積層  
フィルムを用いた回路基板

## 技術分野

本発明は、表面平滑性や接着性に優れ、特性の異方性が小さい液晶性樹脂積層フィルム、その製造方法および液晶性樹脂積層フィルムを用いた回路基板に関するものである。

## 背景技術

液晶性樹脂は、高強度、高耐熱性、低線膨張率、高絶縁性、低吸湿性、高ガスバリアー性に優れた樹脂であり、これまで射出成型品や繊維などとして実用化されている。また、該樹脂を用いたＩＣ用のプリント配線基板の開発も検討されている。

液晶性樹脂は溶融状態でも流動によって分子が配向し、通常の押し出しを行うと流れ方向に強い配向が生じて異方性の強いフィルムしか得られないばかりか、幅方向に均一に流動せず長手方向に連続したスジ状の流動ムラが生じ、大きな厚みムラとなってしまう。

上述のような流れ方向の異方性を解消する方法として、特公平６－３９５３３号公報、特開平４－２８６６２６号公報では、インフレーション法についての提案がされている。これらの方法によって得られた液晶性樹脂フィルムは、MD/TD方向における物性バランスの問題は基本的に解決されたものの、液晶性樹脂固有の表面あれ（表面平滑性および耐摩耗性の悪さ、厚みムラなど）の問題が解消されない。また、特開平７－２５１４３８号公報、特開平７－３２３５０６号公報では、フラットダイ法を用いて、液晶性樹脂と耐熱性樹脂をラミネートしたのち二軸延伸する方法が、特開平９－７６３９７号公報では液晶性樹脂フィルム表面に接着性の良好な熱可塑性樹脂フィルムをラミネートする方法が提案されている。しかし、これらの方法によって得られた液晶性樹脂フィルムは、MD/T

D方向における物性バランスの問題は解決されるものの、該液晶性樹脂層と該非液晶性樹脂層との層間接着力が小さく、層間剥離が起こりフィルム品質は依然低いものであった。

このように、インフレーション法を用いた場合、厚みムラが悪くなるばかりか、表面平滑性、耐摩耗性に乏しく液晶性樹脂固有の欠点が解消されない。一方、フラットダイ法を用いて液晶性樹脂に耐熱性樹脂をラミネートしたのち二軸延伸した場合、液晶性樹脂フィルムの異方性やフィルム表面の接着性不良が解消されるものの、液晶性樹脂と耐熱性樹脂が層間剥離を起こしフィルムの品質は依然低いものであった。

また、液晶性樹脂は他素材との接着性が悪く、薬品処理やプラズマ処理などが必要であった。

#### 発明の開示

本発明は、上記従来技術の欠点を解消し、液晶性樹脂層と積層する耐熱性樹脂との層間接着性に優れかつ表面平滑性やフィルム表面の接着性に優れ、かつ特性の異方性が小さい液晶性樹脂積層フィルム、その製造方法および液晶性樹脂積層フィルムを用いた回路基板を提供することを目的とする。

この目的を達成する本発明の液晶性樹脂積層フィルムは、(a)液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を積層したフィルムであり、層間の接着力が $30\text{ N/cm}$ 以上であることを特徴とする液晶性樹脂積層フィルムであるか、または、(b)液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を積層したフィルムであり、熱機械分析(TMA)によって測定した該非液晶性熱可塑性樹脂層の熱変形温度( $T_g$ )、該液晶性樹脂層の熱変形温度( $T_i$ )が、 $T_g \geq T_i$ の関係を有することを特徴とする液晶性樹脂積層フィルムである。

この目的を達成する本発明の液晶性樹脂積層フィルムの製造方法は、液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を共押し出しした後に、延伸処理を行うことを特徴とする液晶性樹脂積層フィルムの製造方法である。

この目的を達成する本発明の液晶性樹脂積層フィルムからなる回路基板は、液晶性樹脂積層フィルムの少なくとも片表面に導電体パターンを設けてなることを

特徴とする回路基板である。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明において、液晶性樹脂とは、サーモトロピック液晶樹脂などの溶融状態でも結晶のような規則だった構造を有する樹脂のことであり、従来から知られているものを用いることができる。

例えば、液晶性ポリエステル樹脂の場合、パラヒドロキシ安息香酸（HBA）成分を主メソゲンとして40～90重量%含有し、しかも流動性改良のために4,4'-ジヒドロキシビフェニル（DHB）を含んだ液晶性ポリエステルが好ましい。メソゲンの含有形式は、ランダム共重合、ブロック共重合、ブランチ共重合、およびそれらの組み合わせ複合共重合など任意の形式でよいが、本発明の場合、ポリエチレンテレフタレート（PET）あるいはポリエチレンナフタレート（PEN）／HBA／DHB／テレフタル酸（TPA）等からなる液晶性樹脂、HBA／6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸を主成分とする共重合体、HBA／4,4'-ジヒドロキシビフェニルとテレフタル酸、イソフタル酸との共重合体、6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸とパラアミノフェノールとの共重合体、HBA／ハイドロキノン（HQ）／セバシン酸（SA）との共重合体などが好ましい。このような成分から構成される液晶性ポリエステル樹脂は、溶融状態でも規則だった構造を有し、溶融時の流動によって分子が容易に流れ方向に配向するのである。

また、液晶性樹脂を単独で用いる代わりに、上記液晶性樹脂を含むポリマーアロイを用いてもよい。混合あるいは化学結合させるアロイ用ポリマーとしては、ポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリアリレート、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルサルホン、ポリサルホンなどの熱可塑性樹脂を使用することができるが、これらに限定されない。液晶性樹脂と前記ポリマーアロイの混合割合は、重量比で、10：90～90：10が好ましく、より好ましくは20：80～80：20である。液晶性樹脂を含むポリマーアロイも液晶性樹脂による優れた特性を保有する。

本発明において、熱機械分析（TMA）によって測定した熱処理前の該非液晶

性熱可塑性樹脂層の熱変形温度 ( $T_N$ )、該液晶性樹脂層の熱変形温度 ( $T_L$ ) が  $T_N \geq T_L$  である非液晶性熱可塑性樹脂としては、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリアリレート、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルサルホン、ポリサルホンおよびこれらの共重合体やブレンド物が好ましい。また、熱処理前の熱変形温度である  $T_{N0}$  (非液晶性熱可塑性樹脂)、 $T_{L0}$  (液晶性樹脂) が  $T_{N0} < T_{L0}$  であるが、熱処理後の該積層フィルムの該非液晶性熱可塑性樹脂層の熱変形温度 ( $T_{N1}$ )、該液晶性樹脂層の熱変形温度 ( $T_{L1}$ ) が  $T_{N1} \geq T_{L1}$  となる非液晶性熱可塑性樹脂としては、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルサルホン、ポリサルホンおよびこれらの共重合体やブレンド物を挙げることができ、特に分子内に硫黄を有するポリフェニレンスルフィドが熱処理によって架橋反応がおこり、耐熱性、熱変形温度が向上するため好ましい。また、これらの非液晶性熱可塑性樹脂に通常の過酸化剤およびチオホスフィン酸金属塩などの架橋促進剤またはジアルキル錫ジカルボオキシレート、アミノトリアゾールなどの架橋防止剤を配合することも可能である。

なお、本発明における熱機械分析 (TMA) によって測定した熱変形温度とは、単位断面積あたり一定の引張荷重をかけ、 $20^\circ\text{C}/\text{分}$  の速度で昇温して得られた、温度 ( $^\circ\text{C}$ ) 対寸法変化率 (%) 曲線において、急激に熱変形が生じる前の温度における熱変形曲線の接線と、熱変形が生じた後の熱変形曲線の接線の交点の温度である。

本発明の液晶性樹脂積層フィルムは、液晶性樹脂層と非液晶性熱可塑性樹脂層が積層されてなるフィルムである。液晶性樹脂層は、液晶性樹脂または液晶性樹脂を含むポリマーアロイからなり、非液晶性熱可塑性樹脂層は、非液晶性熱可塑性樹脂からなる。該液晶性樹脂層と該非液晶性熱可塑性樹脂層との層間接着力は、 $30\text{ N/cm}$  以上が必要であり、好ましくは、 $35\text{ N/cm}$  以上である。層間接着力が  $30\text{ N/cm}$  より小さい場合、取り扱い時や二次成形時などにおいて両者が容易に剥離するという欠点が生じる。

積層する非液晶性熱可塑性樹脂層は前記樹脂から得られるものであるが、該非

液晶性樹脂層の空孔率は10%以下である。さらに、実質的に空孔率が1%未満であるものは無孔性である。

空孔率は、液晶性樹脂積層フィルム表面を走査型電子顕微鏡（SEM）で写真撮影し、SEM写真内の空孔をOHPシートにマーキングし、イメージアナライザー（IA）で画像処理して求めた。

このような層間接着性を有する液晶性樹脂積層フィルムは、前記した液晶性樹脂と非液晶性熱可塑性樹脂をそれぞれ共押し出しによって熔融状態で積層することにより得ることができる。本発明の液晶性樹脂積層フィルムの層間接着力は、両者が熔融状態で積層されることにより達成される。一方だけが熔融状態の場合は、つまり、液晶性樹脂層だけまたは非液晶性熱可塑性樹脂層だけが熔融状態の場合、層間接着力が5～10N/cmと小さくなり、層間剥離が生じる。このように、本発明の様な層間接着力を得るためには、両者が熔融状態時に積層させることが必要である。

また、液晶性樹脂は、結晶化速度が早いため、単独で押し出した場合、熔融状態から大気中で急冷された時フィルム表面がフィブリル化する。そのため、一般的に液晶フィルムの表面は、接着性に乏しく、耐摩耗性に乏しい。しかし、本発明の液晶性樹脂積層フィルムの製造方法のように、共押し出しして非液晶性熱可塑性樹脂を積層することで、液晶性樹脂フィルム表面の急冷を緩和するためフィブリル化が抑制され、さらにフィルム表面の接着性が改善される。

このように、共押し出しによって熔融状態で積層することによって液晶性樹脂層と非液晶性熱可塑性樹脂層との層間接着性を向上させることができ、かつ液晶性樹脂層の表層に非液晶性樹脂層を設けることで、液晶性樹脂の欠点の一つである接着性不良を改善できる。つまり、非液晶性熱可塑性樹脂が少なくとも片表面、好ましくは両表面に積層することで接着性の良好な液晶性樹脂積層フィルムとすることができるのである。また、液晶性樹脂の熔融流れを均一にしながら積層フィルムの特性を満足させるには、液晶性樹脂層の厚みが全積層フィルムの厚みの50～95%であることが好ましい。

さらに、非液晶性熱可塑性樹脂層の表面粗さRyは、3μm以下であることがフィルム表面平滑性の点から好ましい。RyとはJIS B0601で定められ

た最大高さのことである。

液晶性樹脂と上記した非液晶性熱可塑性樹脂との溶融積層は、従来から知られている口金内で積層する方法、口金以前で積層アダプターで積層する方法を用いることができ、特に積層アダプターを用いる方法が好ましい。口金は、マニホール下部からリップ先端までの距離が3 cm以上、好ましくは5 cm以上、最も好ましくは10 cm以上で、さらにコートハンガー式になっているものが好ましく幅方向に均一な押し出しをすることができる。

かくして得られた積層フィルムは、 $T_{N0} < T_{Li0}$ の場合、 $T_{N1} \geq T_{Li1}$ となるように熱処理を行う。 $T_{N}$ および $T_{N1}$ は $T_{Li}$ および $T_{Li1}$ よりも3℃以上高いことが好ましく、より好ましくは5℃以上で、最も好ましくは10℃以上である。

熱処理方法は特に限定はされないが、例えば加熱空気中や、輻射熱、ロール加熱によって行うことができ、熱処理温度は、非液晶性熱可塑性樹脂フィルムの融点よりも低い温度に保ち加熱処理する。このとき熱処理温度を逐次増加させる方法で加熱処理した方がより耐熱性が向上するので好ましい。加熱処理時間を調整することで熱変形温度を所望の値に制御することもできる。熱処理温度が融点よりも高い温度では、加熱処理中の形態保持が難しくなるので好ましくない。

かくして得られた液晶性樹脂積層フィルムは、長手方向および/または幅方向へ延伸することで特性の異方性を解消したり、特定の異方性を与えることができるのである。特性の異方性を解消する場合、液晶性樹脂は流れ方向に配向し易いために幅方向へより延伸することが好ましい。延伸温度は、一般の熱可塑性樹脂では樹脂が軟化開始するガラス転移点温度( $T_g$ )以上であるが、本発明では、非液晶性熱可塑性樹脂は軟化させるが、実質的には溶融せずに液晶性樹脂を軟化しないし溶融させる温度条件下で行うのがよい。このとき、熱機械分析(TMA)測定によって求められる熱変形温度において、積層する非液晶性熱可塑性樹脂の熱変形温度が液晶性樹脂のそれ以上であることが必要である。積層する非液晶性熱可塑性樹脂の熱変形温度が液晶性樹脂より低い場合、つまり非液晶性熱可塑性樹脂の方が早く溶融してしまう場合、延伸する液晶性樹脂の支持体となることができず良好な延伸を行うことができないのである。

すなわち、非液晶性熱可塑性樹脂は軟化させるが、実質的には溶融せずに液晶

性樹脂を軟化ないし溶融させる温度条件下で行うことで、均一な延伸を行うことができる。延伸方式は、特に限定されないが、積層フィルムを溶融状態で延伸するためには高温延伸可能な二軸延伸方式が好ましい。延伸は、周速の異なるロール間で行う方法や、フィルムを把持したクリップの間隔を変更するテンター方式で行うことができる。

テンターのフィルム把持クリップの駆動方式にはスクリュー方式、バンタグラフ方式、リニアモーター駆動方式などを挙げることができるが、リニアモーター駆動方式が延伸制御を行いやすい点から好ましい。

延伸処理を長手方向および／または幅方向へ延伸温度条件等を変更して行いたい場合、フィルムを非接触で加熱できる輻射熱加熱方式で長手方向へ延伸し、熱風加熱方式で幅方向へ延伸することができる。輻射熱加熱の熱源としては、熱線ヒーターなどを挙げることができ、周速差の異なるロール間で加熱しながら延伸することが好ましい。なお、このときのフィルムパスは、フィルムを下ロールから上ロールへ垂直に走行させながら延伸する方式や、上ロールから下ロールへ垂直に走行させながら延伸する方式が好ましい。

このようにして得られた、本発明の液晶性樹脂積層フィルムは、少なくとも片表面に導電体パターンを設けた回路基板用途として用いることができ、特に、ＩＣチップを実装する場合のインターポーザとして好ましく用いられる。また、該インターポーザにＩＣチップを実装したＩＣチップパッケージとしても用いられる。

次に本発明の液晶性樹脂積層フィルムの製造方法を液晶性ポリエステル／ポリアミドを例により具体的に示す。

液晶性ポリエステル樹脂としては、“シベラス”（東レ（株））、“ベクトラ”（ポリプラスチック（株））、“ロッドラン”（ユニチカ（株））、“スミカスーパー”（住友化学工業）等を準備する。必要に応じて、酸化珪素、酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、酸化チタン、酸化アルミニウム、架橋ポリエステル、架橋ポリスチレン、マイカ、タルク、カオリンなどの無機、有機化合物や加水分解防止剤、熱安定剤、酸化防止剤などを添加する。熱変形温度が液晶性樹脂以上のポリアミドとして“アモデル”（帝人（株））、“アーレン”（三井化学（株））



、“PA9T”（（株）クラレ）等を準備する。これらの樹脂は水分の存在下において加熱することで加水分解するため、溶融押し出しの前に乾燥・脱水をしておく。

乾燥した原料は、それぞれ $T_m \geq T_i$ となる組み合わせで一軸押出機、二軸押出機、ベント押出機、タンデム押出機などの溶融押出機に供給し、分子量、例えば固有粘度 $[\eta]$ を極力低下させないように窒素気流下、あるいは真空下で溶融押し出しする。なお、原料中の異物を除去するために、溶融樹脂を適宜フィルター、例えば、焼結金属、多孔性セラミック、サンド、金網等で濾過しながら押し出しすることが好ましい。

溶融押し出し後、ポリアミド層／液晶ポリエステル層／ポリアミド層となるように3層積層アダプターによって積層し、Tダイロ金からフィルム状に押し出し、公知の密着手段である静電印加法、エアーチャンバー法、エアーナイフ法、プレスロール法などでドラムなどの冷却媒体に密着冷却固化させる。

かくして得られたキャストフィルムは必要に応じて延伸処理を行うが、延伸方式は縦一軸延伸、横一軸延伸、逐次二軸延伸、同時二軸延伸などの任意の方法で延伸処理する。延伸温度は液晶性樹脂の溶融温度以上であり、このとき、非液晶性熱可塑性樹脂は軟化させるが、実質的には溶融せずに液晶性樹脂を軟化ないし溶融させる温度で行う。液晶ポリエステル樹脂の場合には220～350℃の範囲であることが多い。延伸倍率は一方向につき2～8倍、好ましくは2～4倍が好ましい。さらに延伸処理のあと、必要に応じて熱固定を行ってもよい。

このようにして得た液晶性樹脂積層フィルムは、層間の接着性およびフィルム表面の接着性に優れ、かつ、表面が平滑性で特性が等方的である。

このようにして得られた液晶性樹脂層の少なくとも片面に導電体パターンを、銅箔エッチング（例えば、塩化第2鉄水溶液で）で作成したり、該導電体パターンを金型でプレス熱転写したのち、該パターン溝内に導電ペーストを注入して作成し、回路基板を得ることができる。また、本発明の回路基板を積層して多層回路基板としても良い。さらに、該多層回路基板にスルーホールを設けてもよい。スルーホールは、ドリル、レーザー、溶融貫通法などの方法で設けることができる。さらに、スルーホールをメッキするなどの方法で層間の回路を接続すること

もできる。

このようにして得られた回路基板は、ICチップを実装するためのインターポーザとして好適であり、該インターポーザにICチップを実装したICチップパッケージとして用いることができる。

さらに、本発明の液晶性樹脂積層フィルムの製造方法を液晶性ポリエステル／ポリフェニレンスルフィドを例にとり具体的に示す。

液晶性ポリエステル樹脂としては、先と同等のものを準備する。 $T_{NI} \geq T_{Li}$ となる非液晶性熱可塑性樹脂としてポリフェニレンスルフィド“RYTON”（東レ（株））を準備する。これらの樹脂は水分の存在下において加熱することで発泡するため、溶融押し出しの前に乾燥・脱水をしておく。

乾燥した原料は、それぞれ一軸押出機、二軸押出機、ベント押出機、タンデム押出機などの溶融押出機に供給し、分子量、例えば固有粘度 $[\eta]$ を極力低下させないように窒素気流下、あるいは真空中で溶融押し出しする。なお、原料中の異物を除去するために、溶融樹脂を適宜のフィルター、例えば、焼結金属、多孔性セラミック、サンド、金網等で濾過しながら押し出しすることが好ましい。

溶融押し出し後、ポリフェニレンスルフィド層／液晶ポリエステル層／ポリフェニレンスルフィド層となるように3層積層アダプターによって積層し、Tダイ口金からフィルム状に押し出し、公知の密着手段である静電印加法、エアーチャンバー法、エアーナイフ法、プレスロール法などでドラムなどの冷却媒体に密着冷却固化させる。

かくして得られたキャストフィルムはこの段階では $T_{Li} < T_{Ni}$ であるため $T_{Ni} \geq T_{Li}$ となるように加熱処理を行う。熱処理温度条件は、加熱空気中でポリフェニレンスルフィドの融点より低い温度に保ち逐次熱処理温度を増加させる。熱処理終了後必要に応じて延伸処理を行うが、延伸方式は縦一軸延伸、横一軸延伸、逐次二軸延伸、同時二軸延伸などの任意の方法で延伸処理する。延伸温度は液晶性樹脂の溶融温度以上であり、このとき非液晶性熱可塑性樹脂は軟化させるが、実質的には溶融せずに液晶性樹脂を軟化ないし溶融させる温度で行う。液晶ポリエステル樹脂の場合には220～350℃の範囲であることが多い。延伸倍率は一方向につき2～8倍、好ましくは2～4倍が好ましい。さらに延伸処理のあと、

必要に応じて熱固定を行ってもよい。

このようにして得られた液晶性樹脂積層フィルムは、層間の接着性およびフィルム表面の接着性に優れ、かつ、表面が平滑性で特性が等方的である。

このようにして得られた液晶性樹脂積層フィルムは、上記の方法で回路基板を作成することができ、このようにして得られた回路基板は、ＩＣチップを実装するためのインターポーザとして好適であり、該インターポーザにＩＣチップを実装したＩＣチップパッケージとして用いることができる。

## 実施例

以下、実施例、比較例により、本発明をさらに詳細に説明する。

物性値の測定方法：

### 1. 層間接着力

層間接着力は、ASTM D903-49に従って測定した。

### 2. 空孔率

積層フィルムの表面を走査型電子顕微鏡（SEM；S-2100A 日立製）で拡大観察し、100視野写真撮影し、撮影したSEM写真内の空孔をOHPシートにマーキングし、イメージアナライザー（IA）で画像処理を行い、次式によって求め、100視野を平均した。

$$(\text{視野内のフィルム表面の空孔面積}) / (\text{視野内の積層フィルム表面積}) \times 100\%$$

### 3. 熱変形温度

熱機械分析（TMA）は、真空理工（株）社製熱分析ステーション（MTS-9000）、試料測定モジュール（TM-9400）を用い、幅4ミリ、長さ15ミリの試験フィルムに単位断面積あたり162MPaの引張荷重をかけ、20℃/分の速度で昇温して、温度（℃）～寸法変化率（％）曲線を作図した。得られた熱変形曲線において、急激に熱変形が生じる前の温度における熱変形曲線の接線と、熱変形が生じた後の熱変形曲線の接線の交点を熱変形温度とした。

### 4. 厚みムラ

アンリツ製フィルムシックネステストKG601Aおよび電子マイクロメータ

—K306Cを用い、幅30ミリ、長さ40mにサンプリングしたフィルムを連続的に厚み測定する。長手方向から幅方向それぞれの厚み最大値TMAX ( $\mu\text{m}$ )、および最小値TMIN ( $\mu\text{m}$ ) から、変動幅Rを $R = TMAX - TMIN$ で求め、平均厚みTAVE ( $\mu\text{m}$ ) から

$$\text{厚みムラ}(\%) = R / TAVE \times 100$$

として求めた。

厚みムラが10%未満であれば○、10%以上15%未満であれば△、15%以上であれば×とした。

#### 5. フィルム厚み構成

フィルムをパラフィン包埋し、ミクロトームによってフィルム断面方向に切断して切片とし、これを透過型明視野光学顕微鏡や偏光顕微鏡によって観察し、それぞれの厚みを測定する。

#### 6. 表面平滑性

表面粗さRyをJIS B0601に従い、室温にて測定長2ミリ、カットオフ0.25ミリで測定した。測定装置は、(株)小坂研究所製三次元表面粗さ計を用いた。

#### 7. フィルム表面接着性

フィルム表面にアルミニウムを蒸着し、蒸着層に1ミリ角のクロスカットを100個入れた。ニチバン(株)製セロハンテープを蒸着層のクロスカット上に貼りつけ、指で強く押しつけた後、180度方向に急速に剥離して残存した個数を判定した。70個以上残れば○、70個未満50個以上であれば△、50個未満であれば×とした。

#### 8. 機械特性

積層フィルムの引張強度、伸度は、JIS K7127に規定された方法により、弾性率(ヤング率)はJIS Z1702に規定された方法により、インストロンタイプの引張試験機を用いて25℃、65%RH雰囲気中で測定した。

#### 実施例1

液晶性樹脂(LCP)として、市販の東レ(株)製“シベラス”を用い、非液

晶性熱可塑性樹脂として、市販の帝人（株）製ポリフタルアミド樹脂“アモデル”を用いた。

TMAによって測定した該液晶性樹脂（LCP）、該非液晶性熱可塑性樹脂の熱変形温度はそれぞれ270℃、285℃であった。

該液晶性樹脂（LCP）は130℃で6時間真空乾燥し、非液晶性熱可塑性樹脂は120℃で24時間真空乾燥した。

乾燥の終了した原料は、それぞれシリンダー径が90mmの溶融押出機に供給し、該液晶性樹脂（LCP）は320℃、該非液晶性熱可塑性樹脂フィルムは340℃で溶融させた後、アモデル/LCP/アモデルの3層となるように積層アダプターで積層させ、リップ幅600ミリのTダイ口金からフィルム状に押し出した。溶融流動状態は口金中央部、エッジ部ともに均一であり、ムラは見られなかった。このようにして押し出した溶融フィルムは、エアーナイフによって表面温度が25℃に保たれた直径1mのキャストリングドラムに密着冷却固化させた。

次に、このキャストフィルムをパンタグラフ方式の同時二軸延伸装置に供給してLCPは溶融するが表層フィルムは軟化するが溶融しない温度である270℃に加熱し、長手方向に2倍、幅方向に3.5倍延伸して250℃で熱処理した。このようにしてアモデル/LCP/アモデル各層の厚みが10μm/50μm/10μmとなる積層フィルムを得た。このようにして得られた積層フィルムの層間接着力は30N/cmであり、表層のアモデルは空孔率が0%の無孔性であった。該フィルムの特性を表1に示すが、表面は平滑であり、接着性の良好な二軸延伸液晶フィルムであった。

## 実施例2

液晶性樹脂（LCP）として市販のポリプラスチック（株）製“ベクトラA950”を用い、非液晶性熱可塑性樹脂としては市販のGEプラスチック製ポリエーテルイミド（PEI）“ウルテム1000”を用いた。TMAによって測定した該液晶性樹脂（LCP）、該非液晶性熱可塑性樹脂の熱変形温度はそれぞれ180℃、220℃であった。

該液晶性樹脂（LCP）および該非液晶性熱可塑性樹脂は150℃で4時間真

空乾燥し、乾燥の終了した原料は、それぞれシリンダー径が90mmの熔融押出機に供給し、該液晶性樹脂（LCP）および該非液晶性熱可塑性樹脂は340℃で熔融させたのち、PEI/LCP/PEIの3層となるように積層アダプターで積層させ、リップ幅600ミリのTダイ口金からフィルム状に押し出した。

熔融流動状態は、口金中央部、エッジ部ともに均一であり、ムラは見られなかった。このようにして押し出した熔融フィルムは、エアーナイフによって表面温度が25℃に保たれた直径1mのキャストドラムに密着冷却固化させた。

次に、このキャストフィルムをパンタグラフ方式の同時二軸延伸装置に供給して該液晶性樹脂（LCP）は熔融するが、該非液晶性熱可塑性樹脂は軟化するが熔融しない200℃に加熱し、長手方向に2.5倍、幅方向に5倍延伸して200℃で熱処理した。このようにしてPEI/LCP/PEI各層の厚みが5μm/50μm/5μmとなる積層フィルムを得た。このようにして得られた積層フィルムの層間接着力は32N/cmであり、表層のPEIは空孔率が0%の無孔性であった。該フィルムの特性を表1に示すが、表面が平滑で接着性の良好な二軸延伸液晶フィルムであった。

### 実施例3

液晶性樹脂（LCP）として、市販の東レ（株）製“シベラス”を用い、非液晶性熱可塑性樹脂として、東レ（株）製ポリフェニレンフルフィド（PPS）樹脂である“RYTON”を用いた。

該液晶性樹脂（LCP）は130℃で6時間真空乾燥し、非液晶性熱可塑性樹脂は170℃、5時間真空乾燥した。

乾燥の終了した原料は、それぞれシリンダー径が90mmの熔融押出機に供給し、該液晶性樹脂（LCP）は320℃、該非液晶性熱可塑性樹脂は320℃で熔融させた後、PPS/LCP/PPSの3層となるように積層アダプターで積層させ、リップ幅600ミリ、Tダイ口金からフィルム状に押し出した。熔融流動状態は口金中央部、エッジ部ともに均一であり、ムラは見られなかった。このようにして押し出した熔融フィルムは、エアーナイフによって表面温度が25℃に保たれた直径1mのキャストドラムに密着冷却固化させた。得られたキ

キャストフィルムの $T_{Li}$ 、 $T_{Ni}$ はそれぞれ270℃、90℃であった。

続いて該キャストフィルムを270℃で2時間熱処理したのち280℃で2時間熱処理した。熱処理後の $T_{Li}$ 、 $T_{Ni}$ はそれぞれ273℃、285℃であった。該熱処理フィルムを高温延伸可能な延伸装置に供給してLCPは溶融するが表層フィルムは軟化するが溶融しない温度である280℃に加熱し、長手方向に2倍、幅方向に3.5倍延伸して250℃で熱固定した。このようにしてPPS/LCP/PPS各層の厚みが10 $\mu$ m/50 $\mu$ m/10 $\mu$ mとなる積層フィルムを得た。得られた積層フィルムの層間接着力は31N/cmであり、表層のPPSは空孔率が0%の無孔性であった。該フィルムの特性を表1に示すが、表面は平滑であり、接着性の良好な二軸延伸液晶フィルムであった。

#### 実施例4

押し出しフィルムを280℃で4時間熱処理する以外は実施例3と同様にして、PPS/LCP/PPS積層熱処理フィルムを得た。熱処理後の $T_{Li}$ 、 $T_{Ni}$ はそれぞれ271℃、280℃であった。

該熱処理フィルムを高温延伸装置に供給してLCPは溶融するが表層フィルムは軟化するが溶融しない温度である275℃に加熱し、長手方向に2倍、幅方向に3.5倍延伸して250℃で熱固定した。このようにしてPPS/LCP/PPS各層の厚みが10 $\mu$ m/50 $\mu$ m/10 $\mu$ mとなる積層フィルムを得た。得られた積層フィルムの層間接着力は31N/cmであり、表層のPPSは空孔率が0%の無孔性であった。該フィルムの特性を表1に示すが、表面は平滑であり、接着性の良好な二軸延伸液晶フィルムであった。

表 1

	層間 接着力 (N / cm)	空孔率 (%)	厚みムラ 縦／横	縦／横 膜厚 (μm)	縦／横 Ry (μm)	7μm 表面 接着性	引張強度 (MPa) 縦／横	縦／横 (%)	弾性率 (GPa)
実施例 1	3.0	0	○／○	50/70	0.4	○	210/220	15/13	7.0/7.2
実施例 2	3.2	0	○／○	50/60	0.6	○	230/250	12/10	7.5/8.0
実施例 3	3.1	0	○／○	50/70	0.5	○	220/230	12/11	7.0/8.0
実施例 4	3.1	0	○／○	50/70	0.8	○	220/230	13/12	6.9/7.1

## 比較例 1

液晶性樹脂 (LCP) として市販の住友化学 (株) 製 “スミカスーパー E 6000” を用い、LCP 単層フィルムを製膜した。該液晶性樹脂 (LCP) は 130℃ で 6 時間真空乾燥し、乾燥の終了した原料を、シリンダー径が 90 mm の溶融押出機に供給し、350℃ で溶融させた後、リップ幅 600 ミリの T ダイ口金からフィルム状に押し出してキャストフィルムを得た。次いで、該キャストフィルム両面に未延伸無孔性 PPS フィルムをロールラミネータを用い、250℃ でラミネートし、ラミネートフィルムを得た。このラミネートフィルムの  $T_{Li}$ 、 $T_{Ni}$  はそれぞれ 275℃、90℃ であった。

次いで、該ラミネートフィルムを実施例 3 と同様に熱処理をおこなって PPS / LCP / PPS 積層熱処理フィルムを得た。熱処理後の  $T_{Li}$ 、 $T_{Ni}$  はそれぞれ 276℃、280℃ であった。

該熱処理フィルムを高温延伸装置に供給して LCP は溶融するが表層のフィルムは軟化するが溶融しない温度である 278℃ に加熱し、実施例 3 と同様に延伸したが、LCP と PPS の層間接着力が低いため延伸ムラがみられ、厚みムラの



大きいフィルムとなった。得られた積層フィルムの層間接着力は $5\text{ N/cm}$ であり容易に剥離可能なものであった。また、表層のPPSは空孔率が0%の無孔性であった。該積層フィルムの特性を表2に示すが、得られた積層フィルムは容易に層間剥離するフィルムであった。

#### 比較例2

非液晶性熱可塑性樹脂として、TMAによって測定した熱変形温度が $80^{\circ}\text{C}$ であるポリエチレンテレフタレート樹脂を用い、該樹脂の押し出し温度を $300^{\circ}\text{C}$ とする以外は実施例1と同様にキャストフィルムを得た。溶融流動状態はエッジ部の流動が不良であり、フィルム幅が変化した。引き続き $260^{\circ}\text{C}$ で延伸処理を行ったが、PETフィルムが溶融してしまい良好な延伸を行うことができなかった。このときLCPフィルムは溶融してないためフィルムが縦に裂けてしまった。そこでキャストフィルムの特性を表2に示すが、該キャストフィルムの層間接着力は $30\text{ N/cm}$ であった。

#### 比較例3

液晶性樹脂(LCP)としてポリプラスチック(株)製“ベクトラA950”を用い、LCP単層フィルムを製膜した。

該液晶性樹脂(LCP)は $150^{\circ}\text{C}$ で4時間真空乾燥し、乾燥の終了した原料は、シリンダー径が $90\text{ mm}$ の公知の溶融押出機に供給し、 $320^{\circ}\text{C}$ で溶融させたのち、リップ幅 $600\text{ mm}$ のTダイ口金からフィルム状に押し出した。溶融流動状態は、口金エッジ部の流動が不安定であり、さらにフィルムには縦スジが多く見られた。このようにして押し出した溶融フィルムは、ワイヤ状電極から $10\text{ KV}$ の電圧を印可しながら表面温度が $25^{\circ}\text{C}$ に保たれた直径 $1\text{ m}$ のキャストイングドラムに密着冷却固化させた。

このようにして得られたキャストフィルムは、実施例2と同様の条件で延伸を試みたが、フィルムが縦に裂け、延伸フィルムは得られなかった。そこでキャストフィルムの特性を表2に示す。

## 比較例 4

実施例 3 と同様にして得られた押し出しフィルムを熱処理せずに高温延伸装置に供給して実施例 3 と同様に 280℃に加熱して延伸したが、非液晶性熱可塑性樹脂層が溶融してしまい、液晶性樹脂層を延伸することができなかった。そこで、キャストフィルムの特性を表 2 に示す。

## 比較例 5

比較例 1 でキャストフィルムの両面に空孔率が 80% の PTFE (ポリテトラフルオロエチレン) フィルムを用いる以外は比較例 1 と同様にラミネートフィルムを得た後、パンタグラフ方式の同時二軸延伸装置に供給して該液晶性樹脂 (LCP) は溶融するが、該非液晶性熱可塑性樹脂は軟化するが溶融しない 278℃に加熱し、長手方向に 2.5 倍、幅方向に 5 倍延伸して 200℃で熱処理した。このようにして PTFE/LCP/PTFE 各層の厚みが 5  $\mu$ m/50  $\mu$ m/5  $\mu$ m となる積層フィルムを得た。得られた積層フィルムの層間接着力は 15 N/cm であった。また、表層の PTFE は空孔率が 80% の多孔性フィルムであった。該積層フィルムの特性を表 2 に示すが、該積層フィルムは表面の接着性が  $\times$  であり、また表層の PTFE が多孔性のため表面平滑性が悪化し、回路基板として使用する際の導電体パターン形成に問題が生じた。

表 2

	層間 接着力 (N / cm)	空孔率 (%)	厚みムラ 縦／横	液晶/全7μm 厚(μm)	面粗糙 Ry(μm)	7μm 表面 接着性	引張強度 (MPa) 縦／横	伸び (%)	弾性率 (GPa)
比較例 1	5	0	×／×	50/70	0.5	○	220/230	12/11	7.0/7.2
比較例 2	30	0	×／×	300/400	10	△	190/50	30/8	7.0/2.1
比較例 3			×／×	330/330	55	×	200/20	7/3	6.0/1.2
比較例 4	31	0	○／○	300/420	0.8	○	180/50	7/4	6.3/1.4
比較例 5	15	80	△／△	50/50	8	×	210/220	13/12	7.0/7.0

## 産業上の利用可能性

以上のようにして得られた液晶性樹脂層積層フィルムは、上記の方法で回路基板を作成することができ、このようにして得られた回路基板は、ICチップを実装するためのインターポーザとして好適であり、該インターポーザにICチップを実装したICチップパッケージとして用いることができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を積層したフィルムであり、層間の接着力が $30\text{ N/cm}$ 以上であることを特徴とする液晶性樹脂積層フィルム。
2. 非液晶性熱可塑性樹脂層の空孔率が $10\%$ 以下であることを特徴とする、請求の範囲第1項に記載の液晶性樹脂積層フィルム。
3. 非液晶性熱可塑性樹脂層が無孔性であることを特徴とする、請求の範囲第1項に記載の液晶性樹脂積層フィルム。
4. 液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を積層したフィルムであり、熱機械分析（TMA）によって測定した該非液晶性熱可塑性樹脂層の熱変形温度（ $T_g$ ）、該液晶性樹脂層の熱変形温度（ $T_L$ ）が、 $T_g \geq T_L$ の関係を有することを特徴とする液晶性樹脂積層フィルム。
5.  $T_g \geq T_L$ となる非液晶性熱可塑性樹脂が、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルサルホン、ポリサルホン、およびこれらの共重合体およびブレンド物から選ばれた少なくとも1種のものであることを特徴とする請求の範囲第4項に記載の液晶性樹脂積層フィルム。
6. 熱機械分析（TMA）によって測定した非液晶性熱可塑性樹脂層の熱変形温度（ $T_{Ng}$ ）、液晶性樹脂層の熱変形温度（ $T_{Lg}$ ）が、 $T_{Ng} < T_{Lg}$ の関係を有する積層フィルムが熱処理されることにより、該非液晶性熱可塑性樹脂層の熱変形温

度 ( $T_{Ni}$ )、該液晶性樹脂フィルムの熱変形温度 ( $T_{Li}$ ) が、 $T_{Ni} \geq T_{Li}$ とされてなることを特徴とする請求の範囲第4項または第5項に記載の液晶性樹脂積層フィルム。

7.  $T_{Ni} \geq T_{Li}$ となる非液晶性熱可塑性樹脂が、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、ポリスルホン、およびこれらの共重合体およびブレンド物から選ばれた少なくとも1種のものであることを特徴とする請求の範囲第6項に記載の液晶性樹脂積層フィルム。

8. 液晶性樹脂層の厚みが、全積層フィルム厚みの50～95%であることを特徴とする請求の範囲第1～7項のいずれかに記載の液晶性樹脂積層フィルム。

9. 非液晶性熱可塑性樹脂層の表面粗さ  $R_y$  が、 $3 \mu m$ 未満であることを特徴とする請求の範囲第1～8項のいずれかに記載の液晶性樹脂積層フィルム。

10. 液晶性樹脂層の少なくとも片表面に非液晶性熱可塑性樹脂層を共押し出した後に、延伸処理を行うことを特徴とする液晶性樹脂積層フィルムの製造方法。

11. 共押し出しと延伸処理の間に熱処理を施すことを特徴とする請求の範囲第10項に記載の液晶性樹脂積層フィルムの製造方法。

12. 延伸を、液晶性樹脂層は溶融するが非液晶性熱可塑性樹脂層は軟化するものの実質的に溶融しない温度条件下で実施することを特徴とする請求の範囲第10項または第11項に記載の液晶性樹脂積層フィルムの製造方法。

13. 請求の範囲第1～9項のいずれかに記載の液晶性樹脂積層フィルムの少なくとも片表面に導電体パターンを設けてなることを特徴とする回路基板。

14. ICチップ実装用インターポーザとして用いることを特徴とする、請求の範囲第13項に記載の回路基板。

15. 請求の範囲第14項のインターポーザにICチップを実装したICチップパッケージ。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06702

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> B32B27/08, B29C55/02//B29L9:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> B32B 1/00-35/00, B29C55/00-55/30

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 11-060756, A (Toray Industries, Inc.), 05 March, 1999 (05.03.99), Claims; Par. Nos. [0015] to [0020] (Family: none)	1-4, 6, 8-15
X	JP, 04-135750, A (Daicel Chemical Industries, Ltd.), 11 May, 1992 (11.05.92), Claims; page 14, upper right column, lines 2 to 5	1-4, 6, 8-15
X	EP, 911150, A (HOECHST CELANESE CORPORATION), 28 April, 1999 (28.04.99), Claims; Par. Nos. [0033], [0042] & JP, 11-188815, A	1-15
X	EP, 737707, A (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY LIMITED), 16 October, 1996 (16.10.96), Claims; Page 13, line 33 to page 14, line 27 & JP, 09-12744,	1-15

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
24 November, 2000 (24.11.00)Date of mailing of the international search report  
05 December, 2000 (05.12.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06702

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. CL <sup>7</sup> B32B27/08、B29C55/02//B29L9:00		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. CL <sup>7</sup> B32B 1/00-35/00、B29C55/00-55/30		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
WPI/L		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP、11-060756、A (東レ株式会社)、 5. 3 月. 1999 (05. 03. 99)、 【特許請求の範囲】、【0015】-【0020】 (ファミリーなし)	1-4、 6、8-15
X	JP、04-135750、A (ダイセル化学工業株式会社)、 11. 5 月. 1992 (11. 05. 92)、 特許請求の範囲、第14頁右上欄第2-5行	1-4、 6、8-15
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	24. 11. 00	国際調査報告の発送日
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 平井 裕彰 電話番号 03-3581-1101 内線 3474



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP、911150、A (HOECHST CELANESE CORPORATION) 、 28. 04. 1999 (28. 04. 99) 、 CLAIMS、【0033】、【0042】 & JP、11-188815、A	1-15
X	EP、737707、A (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY LIMITED)、 16. 10. 1996 (16. 10. 96) 、 CLAIMS、PAGE13 LINE33-PAGE14 LINE27 & JP、09-12744、A	1-15